

ВЛИЯНИЕ СОРБЦИИ НА ВЫХОД ИОДА-129 ИЗ БЛИЖНЕЙ ЗОНЫ ПГЗРО

П. А. Блохин, С. А. Богатов, К. А. Болдырев, Д. А. Соболев

Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН, Москва

Статья поступила в редакцию 8 декабря 2023 г.

¹²⁹I является одним из наиболее проблемных радионуклидов с точки зрения потенциальной радиационной опасности и эффективности защитных барьеров ПГЗРО из-за его высокой подвижности и длительного периода полураспада. В статье проведен обзор работ, посвященных сорбции ¹²⁹I на типичных материалах инженерных барьеров ПГЗРО в кристаллических породах – бентоните и стальных контейнерах для остеклованных высокоактивных отходов. Показано, что учет реалистичных значений коэффициентов межфазного распределения ¹²⁹I на бентоните и продуктах коррозии углеродистой стали мало влияет на его выход за пределы ближней зоны ПГЗРО. Существенная задержка переноса ¹²⁹I в ближней зоне ПГЗРО может быть достигнута при заполнении пустого пространства контейнера РАО селективными сорбентами.

Ключевые слова: миграция радионуклидов, радиоiod, моделирование, радиоактивные отходы.

Введение

Работа ядерного промышленного комплекса приводит к генерации большого массива радиоактивных отходов (РАО), среди компонентов которых изотоп иода¹ ¹²⁹I является критически важным для оценки безопасности подземного захоронения. Его выход из форм РАО, захороненных в глубоких геологических формациях, в долгосрочной перспективе может оказаться определяющим с точки зрения потенциальной радиационной опасности ПГЗРО [1], [2] из-за длительного периода полураспада ($T_{1/2} = 1,57 \cdot 10^7$ лет) и высокой подвижности в материалах каскада инженерных и природных барьеров.

Такая высокая подвижность связана с анионной природой форм переноса иода и, как

следствие, его низким сродством к сорбции на преимущественно отрицательно заряженных поверхностях минеральных фаз вмещающих сред. Для оценки долгосрочной стабильности и безопасности пунктов окончательной изоляции РАО важно понимание путей выхода, поведения и миграции ¹²⁹I в материалах системы инженерных барьеров безопасности (СИБ). Понимание механизмов поглощения радиоиода материалами СИБ необходимо для обеспечения долговременной радиационной безопасности пунктов глубинного захоронения радиоактивных отходов (ПГЗРО).

В научном сообществе значительные усилия были направлены на определение параметров сорбционного замедления ¹²⁹I во время переноса в подземном пространстве, однако полученные результаты не однозначны с точки зрения

¹ В данной работе используется написание «иод» вместо общепринятого «йод», как принято в химической литературе.

его миграционного поведения. Разброс экспериментальных значений коэффициентов межфазного распределения (K_d) очень высок. Простейшим выходом в данной ситуации является консервативное предположение о полном отсутствии сорбции иода на материалах инженерных барьеров при оценках безопасности ПГЗРО, что и предполагается в [1], [2]. Возникает вопрос, насколько оправдан данный подход и как может повлиять учет сорбции иода на выбор концепции СИБ ПГЗРО, сооружение которого планируется на участке «Енисейский» [3].

В данной статье рассматриваются механизмы сорбции и сделана количественная оценка влияния K_d на выход ^{129}I за пределы СИБ ближней зоны ПГЗРО [3], в качестве которых в базовом варианте рассматривается алюмофосфатная матрица (АФС) остеклованных высокоактивных РАО (ОВАО), продукты коррозии стального контейнера и буферный материал на основе бентонитовой глины. Рассмотрено влияние заполнения пустого пространства контейнера селективным сорбентом ^{129}I на его перенос в СИБ.

Ожидаемые формы нахождения иода в ОВАО и водной фазе ближней зоны ПГЗРО

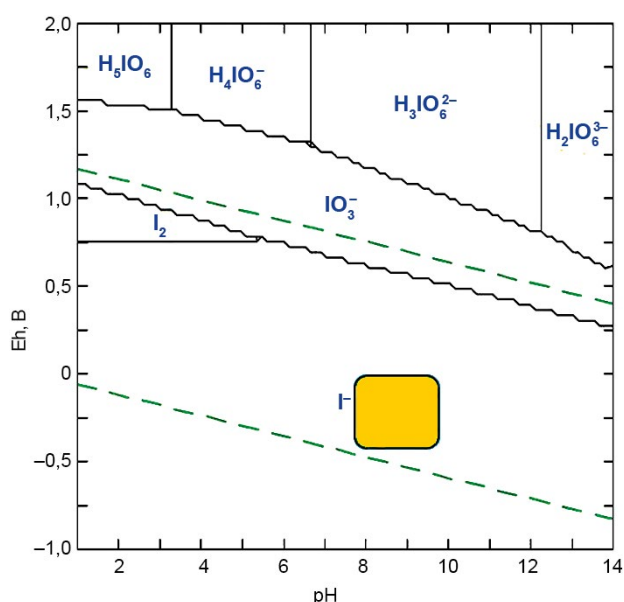
При переработке ОЯТ на стадии растворения концентрированной азотной кислотой большая часть иода, находящаяся в ОЯТ в химической форме преимущественно в виде иодида цезия, окисляется до молекулярного иода и 92–99% его исходной активности выходит из объема воды в газовую фазу [4]–[7]. Оставшаяся после растворения в азотной кислоте и экстракции целевых продуктов часть может находиться в растворе в виде соединений иодатов (IO_3^-) и нерастворимых форм типа коллоидов иодидов серебра [8] или некоторых других металлов (например — Pd [9]), обладающих большими выходами при делении или являющихся продуктами их распада.

На стадии варки натрий-алюмофосфатного стекла (АФС) в печь добавляют реагенты (этиленгликоль и гидроксид натрия) [10], [11], формирующие восстановительную среду. Иод должен (хотя бы частично) переходить в формы иодидов (I^-) и в той или иной степени иодатов (IO_3^-) [12]–[14], причем иодаты могут быть более стабильными, чем иодиды [15]. Остаточное содержание иода в ОВАО (АФС) консервативно оценивается как 4% его исходного содержания в перерабатываемом отработавшем ядерном топливе (ОЯТ) [7]. Формирование в стеклах растворимых форм иода подтверждается примерно одинаковыми скоростями выщелачивания,

определявшимися как по иоду, так и по основному компоненту многих матриц, рассматриваемых для удержания радиоактивного иода, хотя отмечается, что для некоторых матриц скорость выщелачивания по иоду была меньше [16].

Поведение иода в условиях ПГЗРО сильно зависит от окислительно-восстановительного потенциала контактирующего водного раствора. Поведение форм иода в продуктах выщелачивания ОВАО в значительной степени будет определяться их взаимодействием с продуктами коррозии стального контейнера в условиях радиолитического разложения воды, вызванного ее контактом с ОВАО. В общем случае радиолитическое разложение подземных вод будет формировать окислительную среду (см., например, [17]), и иод может присутствовать в виде ионов I^- и IO_3^- . Подобное явление изучалось в [18]. Контакт же с зоной бентонита, обладающего восстановительными свойствами, приведет к преимущественно иодидной форме — ожидаемое значение рН подземных вод, кондиционированных бентонитом, составит 7,5–9, и иод (без учета влияния продуктов коррозии контейнера и радиолитического разложения) будет находиться в форме иодида (состав воды согласно [19], расчет проведен в программе Spna [20], рис. 1). Отметим, что в боросиликатных матрицах ОВАО иод также находится в виде иодид-иона [21].

Наиболее стабильная форма иода в подземном пространстве — твердая минеральная фаза



$T = 25^\circ\text{C}$ [I^-]_{сумм} = 10 мкмоль/л, $[\text{Ca}^{2+}] = 1,21$ ммоль/л, $[\text{Na}^+] = 1,4$ ммоль/л, $[\text{Mg}^{2+}] = 0,49$ ммоль/л, $[\text{CO}_3^{2-}] = 3,3$ ммоль/л, $[\text{SO}_4^{2-}] = 0,16$ ммоль/л, $[\text{Cl}^-] = 0,71$ ммоль/л, $[\text{K}^+] = 0,12$ ммоль/л

Рис. 1. Диаграмма Пурбэ форм иода (построено в расчетном коде Spna [20]; желтым выделены прогнозируемые условия в зоне ПГЗРО)

иодида серебра AgI, — обнаруживается в природе в виде минералов иодаргирита и иодирита [22], [23], и эти минералы могут служить природными аналогами для рассмотрения ограничения скорости миграции иодида из ОВАО. Следует отметить, что в литературе сообщается о вероятности перехода находящегося в ОВАО в составе коллоидного иодида серебра, AgI, в растворимые формы в ходе реакции с природными сульфид-ионами с образованием очень мало-растворимого сульфида Ag₂S (а также селенидов) [24], что подтверждено нашими расчетами в расчетном коде PHREEQC [25] (табл. 1).

Таблица 1. Растворимость в воде (выщелате) / бентонитовой воде, моль/л

Фаза	Растворимость серебра в воде (выщелате) / бентонитовой воде	Формула
Фосфат серебра, Ag ₃ PO _{4(s)}	8,36·10 ⁻⁴ моль/л	Ag ₃ PO ₄
Сульфид серебра, минерал акантит	3,24·10 ⁻¹² моль/л	Ag ₂ S
Иодид серебра, минерал иодирит	1,0·10 ⁻⁸ моль/л	AgI

Среди возможных механизмов минерализации иода следует рассмотреть также и соосаждение с фосфатными минералами (содержание фосфатов в ОВАО составляет более 50% по окислам [11]). Выщелачивание стекол этого типа сопровождается выходом в раствор значительных количеств фосфат-ионов (от десятков до сотен мг/л), способных привести к образованию фосфата кальция при контакте с кальцием бентонита. Вследствие того, что апатиты образуют мало-растворимые фторапатиты, образование галоген-апатитов не стоит исключать при моделировании миграции радиоиода (формула Ca₅(PO₄)₃X, X — OH, F, Cl, I) [26], [27]. Выход макрокомпонентов матрицы АФС, сопровождающийся потенциальными вторичными реакциями в массиве бентонитового барьера: реакциями десорбции кальция из бентонита при выходе ионов натрия из матрицы, а также образованием гидроксиапатита (а также, как говорилось выше, вероятно, и галогенапатитов) при взаимодействии кальция с фосфат-ионами положен в основу модели выщелачивания в [28]. Также оценивалось влияние выщелатов АФС-матрицы на бентонит. Результаты моделирования контакта 1 дм³ воды НКМ с 1 кг бентонита марки 10-й Хутор представлены в табл. 2. Видно, что индекс насыщения превышен лишь для гидроксиапатита, что указывает на возможность его выпадения при контакте бентонита с выщелатами стекла.

Таблица 2. Результаты моделирования индексов насыщения при контакте бентонита с выщелатами АФС матрицы (состав выщелата по [28], концентрация PO₄³⁻ 2 ммоль/л)

Фаза	ИН	Формула
Berlinite	-11,729	AlPO ₄
Brushite	-17,247	CaHPO ₄ ·2H ₂ O
Hydroxylapatite	4,400	Ca ₅ (OH)(PO ₄) ₃
Strengite	-11,604	FePO ₄ ·2H ₂ O
Vivianite	-16,383	Fe ₃ (PO ₄) ₂ ·8H ₂ O
Whitlockite	-0,536	Ca ₃ (PO ₄) ₂

ИН = lgПАИ – lgПР. ПАИ — текущее произведение ионов в растворе при соответствующей реакции растворения минеральной фазы, ПР — произведение растворимости соответствующей минеральной фазы. ИН > 0 — прогнозируется образование минеральной фазы, ИН < 0 — прогнозируется растворение минеральной фазы.

Сорбция иода на материалах СИБ

Сорбция иода возможна на продуктах коррозии углеродистой стали контейнера — перво-го инженерного барьера после выщелачивания радионуклидов из матрицы ОВАО. Основными продуктами коррозии стали в присутствии бентонита являются высоко кристаллизованные оксигидроксиды железа, преимущественно магнетит, Fe₃O₄ [29]—[31].

Сорбция ионов I⁻ и IO₃⁻ на гематите (Fe₂O₃) и каолине изучалась в [32]. Для сорбции на гематите в ожидаемом диапазоне pH получено значение K_d ≈ 0,6 см³/г, I⁻ сорбировался примерно в 3000 раз слабее иодат-иона. Для сорбции IO₃⁻ на каолине получено K_d ≈ 0,6 см³/г, I⁻ на каолине практически не сорбировался (K_d меньше погрешности измерения).

В около-нейтральной и слабощелочной средах значение K_d (I⁻) на продуктах коррозии стали менялось от 0,2 см³/г при pH = 7,4 [33] до 31,6 см³/г при pH = 7 [34] для ферригидрита, значения же K_d для гематита (Fe₂O₃) и гётита (FeOOH) составляли от единиц до десятков см³/г с тенденцией к снижению с ростом pH. Для иодата значения K_d (IO₃⁻) были гораздо выше — n·10¹⁻³ см³/г для гидроксидов железа [32], [35], [36], причем с ростом кристаллизации степень сорбции падала. В [37] показано, что иллит, практически всегда являющийся аксессуарной примесью в бентоните, эффективно удерживает следовые количества радиоактивного ¹²⁵I. В [38] изучалась диффузия хлорид- и иодид-ионов при разных ионных силах раствора (0,01 М и 0,1 М NaClO₄) при разных

плотностях бентонита ($0,4-1,8 \text{ г/см}^3$) и $\text{pH}=8,2$. Получены значения $K_d(\text{I}^-)$ $2,9 \pm 0,8$, $0,36 \pm 0,04$ и $K_d(\text{Cl}^-)$ $1 \pm 0,5$, $0,2 \pm 0,08 \text{ см}^3/\text{г}$ для $0,01 \text{ М}$ и $0,1 \text{ М}$ NaClO_4 соответственно. Отметим, что значения K_d для I^- находятся в хорошем согласии с данными [39], [40]. В [41] изучали миграцию иодида и иодата сквозь бентонит, концентрации этих ионов варьировались от десятков до сотен мг/л , при этом значения K_d составляли малые величины, $0-0,03 \text{ см}^3/\text{г}$. В работе [42] обнаружено, что иод содержится на уровне единиц мг/кг в карбонатизированных глинах при концентрации в воде на уровне $20-40 \text{ мкмоль/л}$, что дает уровень K_d в районе $0,2-2 \text{ см}^3/\text{г}$ [43]. Следует также отметить, что увеличение сорбции иода следует ожидать в случае использования медных и омедненных контейнеров для ОВАО на металлической меди: с K_d в диапазоне $0,4-190 \text{ см}^3/\text{г}$ [44].

Рассмотрев вышеуказанные факторы, можно представить следующую картину взаимодействия выходящего из ОВАО иода с материалами ближней зоны (рис. 2).

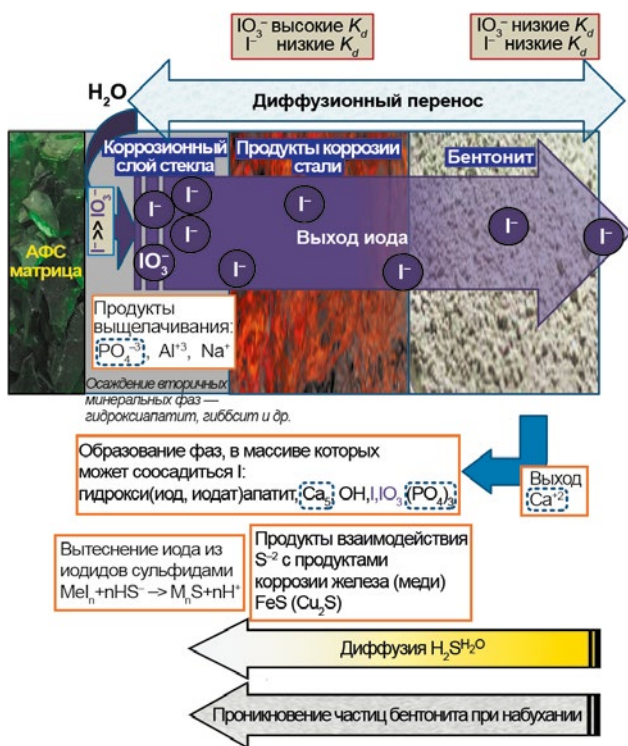


Рис. 2. Схема взаимодействия выходящего из ОВАО иода с материалами ближней зоны

Выводы об ожидаемых значениях $K_d(^{129}\text{I})$ на материалах СИБ

Содержание и формы иода в ОВАО определяются формами нахождения иода в ОЯТ и окислительно-восстановительными процессами в результате переработки ОЯТ и витрификации

ОВАО в АФС. Можно ожидать, что основной формой нахождения иода в стеклах является иодид. В процессе выщелачивания ОВАО происходит сложное взаимодействие выщелачивателей с продуктами коррозии контейнера и бентонитовым буфером в условиях радиолитического воздействия, и иод может находиться как в форме плохо сорбируемых иодидов, так и относительно хорошо сорбируемых иодатов, соотношение между которыми пока неизвестно.

Из анализа приведенных данных можно ожидать, что значение $K_d(\text{I}^-)$ для ближней зоны ПГЗРО участка «Енисейский» будет находиться в диапазоне $n \cdot (10^{-2} \dots 1) \text{ см}^3/\text{г}$. Его референтное значение для дальнейших оценок безопасности консервативно принято равным $0,1 \text{ см}^3/\text{г}$.

Количественные оценки влияния K_d на выход ^{129}I за пределы СИБ

Сорбция на буферном материале (базовый вариант)

Для оценок использовалась типичная СИБ ПГЗРО в кристаллических породах (рис. 3) за исключением того, что контейнер ОВАО предполагался состоящим целиком из углеродистой стали. Рассматривался гипотетический источник с удельной активностью по ^{129}I 10^6 Бк/кг , с массой 1500 кг , из которого происходит выход радиоиода в слой воды, заполняющий пустое пространство контейнера с постоянной скоростью $1,3 \cdot 10^{-4} \text{ год}^{-1}$ (ожидаемая постоянная скорость выхода радиоактивности из АФС, с учетом параметров исходных упаковок с ОВАО,

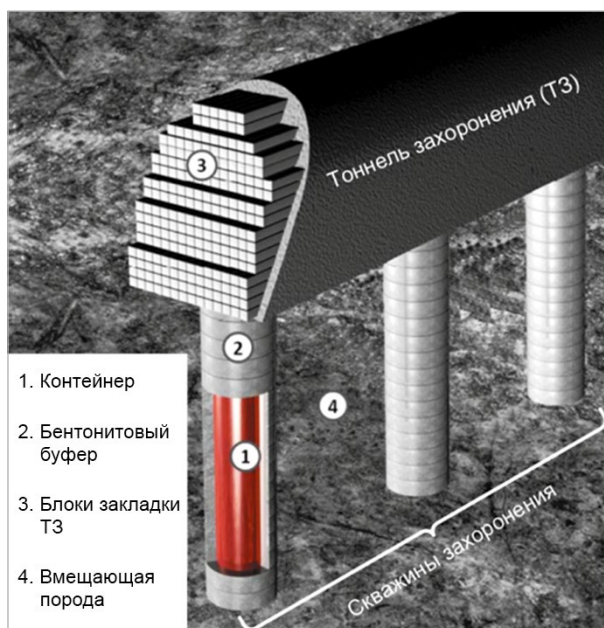


Рис. 3. Иллюстрация концепции KBS-3V для ПГЗРО ОЯТ в кристаллических породах [45]

рассматриваемых для захоронения¹). Считалось, что плотность буфера достаточна для того, чтобы пренебречь адвективным и рассматривать лишь диффузионный поток. Параметры буфера: толщина: 40 см;

сухая плотность: 1600 кг/м³;

открытая пористость: 0,044 об. долей;

эффективный коэффициент диффузии: $3 \cdot 10^{-11}$ м²/с.

В расчетной модели бентонитовый буфер делится на шесть концентрических слоев равной толщины. Предполагалось, что на внешней поверхности бентонитового буфера концентрация ¹²⁹I равна нулю, то есть весь иод, мигрировавший на поверхность бентонитового барьера, мгновенно рассеивается в массиве. Таким образом, в модели исключалось влияние на выход ¹²⁹I наличия природного барьера — вмещающей породы. Полученные значения выходов ¹²⁹I за пределы буфера приведены на рис. 4.

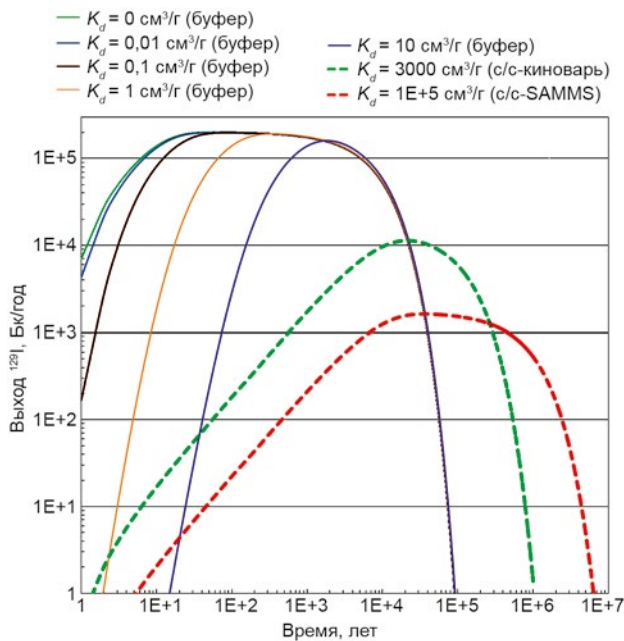


Рис. 4. Зависимости выхода ¹²⁹I за пределы бентонитового буфера от времени для разных значений K_d буфера и селективного сорбента (с/с)

Видно, что для рассмотренных показателей K_d буфера (без добавления селективных сорбентов) в диапазоне от 0 до 10 см³/г изменение максимальных значений выхода ¹²⁹I, определяющих максимальные потенциальные дозы от ПГЗРО,

невелико и составляет примерно $\pm 30\%$ от средней величины. При этом сорбционная задержка выхода иода бентонитовым буфером (примерно на 2000 лет для максимального значения K_d) для долгоживущего ¹²⁹I ($T_{1/2} = 1,57 \cdot 10^7$ лет) не существенна.

Вопрос применения селективных сорбентов ¹²⁹I

Опасность долгоживущих слабо сорбируемых радионуклидов, определяющих в долгосрочной перспективе радиационную опасность ПГЗРО, была осознана достаточно давно, и до настоящего времени ведутся работы по поиску для них селективных сорбентов. Рассматриваемые материалы должны обладать следующими характеристиками:

- высокие значения коэффициента межфазного распределения для выбранного нуклида и достаточная сорбционная емкость для его ожидаемых активностей в ПГЗРО;
- долговременная стабильность в физико-химических условиях эксплуатации для рассматриваемого ПГЗРО;
- технически реализуемые способы внесения материала в СИБ;
- приемлемая стоимость.

Объем пустого пространства контейнера для размещения ОВАО в ПГЗРО может меняться в зависимости от технических решений (2 или 3 бидона с ОВАО, их размещение в старых пенах или перепеналирование), но составляет не менее 100 литров. В настоящее время рассматривается возможность заполнения пустого внутреннего пространства селективным сорбентом, имеющим консистенцию песка. В контексте удержания иода, в качестве селективных сорбентов могут быть применены активированные серебром бентониты [46], сульфид ртути (II) (киноварь), мезопористые керамические субстраты или так называемый мезопористый кварц с самоорганизуемыми монослоями на поверхности (self-assembled monolayers on mesoporous silica — SAMMS) [47]—[50]. В последнем материале частицы кварца с удельной поверхностью порядка 1000 м²/г и размером пор $2 \cdot 10^{-9}$ — $1 \cdot 10^{-8}$ м химически модифицированы функциональными группами, имеющими высокое сродство к сорбируемым комплексам или ионам. Типичные значения K_d (¹²⁹I) для кинвари составляют ~ 3000 см³/г; для SAMMS — 10^5 — 10^6 см³/г.

В настоящее время проницаемости кинвари и SAMMS в форме засыпки не известны. Однако, в качестве хорошего приближения можно считать, что эффективный коэффициент диффузии водной фазы для данных материалов близок к

¹ Берутся параметры интегральной модели, разрабатываемой в настоящее время в ИБРАЭ РАН для оценок долговременной безопасности ПГЗРО. Описание и анализ данной модели выходит за пределы этой статьи. Приводимые результаты носят иллюстративный характер и направлены на сравнительные оценки выхода ¹²⁹I за пределы бентонитового буфера при рассматриваемых значениях K_d .

песку и составит примерно $5 \cdot 10^{-10}$ м²/с при пористости 0,3. Насыпная плотность киновари составляет 5 700 кг/м³, SAMMS — 1 400 кг/м³.

Расчет зависимости выхода ¹²⁹I за пределы бентонитового буфера от времени был повторен для той же модели в предположении заполнения пустого объема контейнера не водой, а насыщенным селективным сорбентом со значениями $K_d = 3000$ см³/г (киноварь) и 10^5 см³/г (SAMMS). Полученные результаты также приведены на рис. 4.

Из рис. 4 видно, что добавление селективного сорбента в упаковку с ОВАО может значительно уменьшить выход ¹²⁹I в окружающую среду в условиях длительного захоронения отходов в ПГЗРО. Максимальное значение выхода ¹²⁹I при этом может быть снижено примерно на 2 порядка величины по сравнению с условиями заполнения пустого пространства упаковок водой. Однако для подтверждения возможности применения в качестве элементов СИБ селективных сорбентов необходимо провести исследования их долговечности и совместимости с иными материалами в условиях физико-химических и биологических воздействий, ожидаемых в конкретном ПГЗРО.

О химической стабильности сорбента на основе киновари можно судить по природным минералам, имеющим схожий химический состав, например — пиритам и халькопиритам. Эти сульфидные породы могут подвергаться окислению с образованием хорошо растворимых соединений, что, в свою очередь, может приводить к высвобождению сорбированного иода. Скорость процесса окисления определяется активностью растворенного кислорода и ионов трехвалентного железа и существенно возрастает при наличии водной фазы. Предполагая размещение сорбента внутри контейнера с ОВАО, следует учитывать также процесс радиолитической водной фазы, продукты которого также повышают окисляющую способность среды.

Однако, в соответствии с критериями приемлемости ОВАО для захоронения, начальное содержание жидкой фазы в контейнере будет крайне мало. Поступление во внутреннее пространство упаковки природной воды при отсутствии экстремальных внешних воздействий ожидается спустя значительное время (не ранее, чем через время порядка 10 000 лет даже для наименее стойкого варианта стального контейнера [51]), когда остаточная радиоактивность ОВАО и содержание кислорода, сохранившиеся в ПГЗРО после закрытия, значительно уменьшатся. Поэтому существенного уноса ¹²⁹I из упаковки в долгосрочной перспективе не ожидается.

Долговременная химическая стабильность новых материалов типа SAMMS специально не изучалась. Однако, из общих соображений, можно ожидать, что их химическая стабильность не должна уступать минеральным сульфидам, исходя из следующих фактов [47]:

- инертная кварцевая матрица не чувствительна к изменению окислительно-восстановительных свойств среды;
- функциональные молекулярные слои SAMMS обладают достаточно высокой стабильностью при небольшом изменении значения pH среды;
- функциональные группы SAMMS расположены в порах малого диаметра, малодоступных для жизнедеятельности микробов.

Кроме того, поступление к контейнеру опасных химических соединений и биоты из подземных вод может быть практически исключено при использовании бентонита с плотностью скелета, обеспечивающей давление набухания свыше 1,65—2 МПа [52], [53].

Выводы

Малые значения коэффициентов сорбции на продуктах коррозии стального контейнера и бентонитовом буфере не приводят к существенной задержке и уменьшению скорости выхода ¹²⁹I за пределы системы инженерных барьеров. Однако значительное уменьшение выхода ¹²⁹I за пределы СИБ может быть достигнуто применением специально подобранных селективных сорбентов, чьи коэффициенты межфазного распределения на несколько порядков величины больше. Основной проблемой использования селективных сорбентов в СИБ ПГЗРО является доказательство их долговременной стабильности. Однако предварительное рассмотрение показывает перспективность данного направления и целесообразность работ по выбору и изучению этой проблемы в условиях ПГЗРО.

Литература

1. Safety Case for the Disposal of Spent Nuclear Fuel at Olkiluoto – Assessment of Radionuclide Release Scenarios for the Repository System. Working Report 2012–09, December 2012. Finland, Eurajoki, Posiva Oy. 2012.
2. Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark. Main report of the SR-Site project. SKB TR-11-01. Svensk Kärnbränslehantering AB, 2011.

3. Дорощев А. Н., Большов Л. А., Линге И. И., Уткин С. С., Савельева Е. А. Стратегический мастер-план исследований в обоснование безопасности сооружения, эксплуатации и закрытия пункта глубинного захоронения радиоактивных отходов // Радиоактивные отходы. 2017. № 1. С. 33–42.
4. Sakurai T., Takahashi A., Ishikawa N., Komaki Y., Ohnuki M., Adachi, T. The iodine species and their behavior in the dissolution of spent-fuel specimens // Nucl. Technol. 1992. Vol. 99. Pp. 70–79. DOI: 10.13182/NT92A34704.
5. National programmes in chemical partitioning: a status report (2010). NEA No. 5425, OECD, 2010. — 124 p.
6. Meleshyn A., Noseck U. Radionuclide Inventory of Vitrified Waste after Spent Nuclear Fuel Reprocessing at La Hague. Basic Issues and Current State in Germany. Report GRS-294, September 2012. — 158 p.
7. Богатов С. А., Блохин П. А., Козлов П. В., Ремизов М. Б. Оценочный расчёт активности некоторых долгоживущих радионуклидов в составе РАО класса 1 — остеклованных ВАО, образующихся при переработке ОЯТ реакторов ВВЭР. // Вопросы радиационной безопасности. 2019. №2. С. 39–46.
8. Bernard-Mozziconacci O., Devisme F., Marignier J.-L., Belloni J. Colloidal silver iodide characterization within the framework of nuclear spent fuel dissolution / Proceedings of the ATALANTE 2004 conference, Nimes, 2004.
9. Buck E. C., Mausolf E. J., McNamara B. K., Soderquist C. Z., Schwantes J. M. Sequestration of radioactive iodine in silver-palladium phases in commercial spent nuclear fuel // J. Nucl. Mater. 2016. Vol. 482. Pp. 229–235. DOI: 10.1016/j.jnucma.2016.10.02
10. Глаголенко Ю. В., Дзекун Е. Г., Ровный С. И., Сажнов В. К., Уфимцев В. П. и др. Переработка отработавшего ядерного топлива на комплексе РТ-1: история, проблемы, перспективы // Вопросы радиационной безопасности. 1997. № 2. С. 3–12.
11. Дзекун Е. Г., Борисов Г. Б., Поляков А. С. и др. Опыт эксплуатации керамического плавителя ЭП-500/1-р по остекловыванию жидких высокоактивных отходов // Атомная энергия. 1994. Т. 76. Вып. 3. С. 183–188.
12. McKeown D. A., Muller I. S., Pegg I. L. Iodine valence and local environments in borosilicate waste glasses using X-ray absorption spectroscopy // J. Nucl. Mater. 2015. Vol. 456. Pp. 182–191. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2014.09.0
13. Jolivet V., Morizet Y., Paris M., Suzuki-Muresan T. High pressure experimental study on iodine solution mechanisms in nuclear waste glasses // J. Nucl. Mater. 2020. Vol. 533. P. 152112. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2020.152111
14. Vénague B., Campayo L., Toplis M. J., Charpentier T., Moskura M., Dussossoy J.-L. Role of alkalis on the incorporation of iodine in simple borosilicate glasses // J. Non. Cryst. Solids. 2022. Vol. 576. P.121278. DOI: 10.1016/j.jnonysol.2021.121278.
15. Morizet Y., Trcera N., Suzuki-Muresan T., Soudani S., Fonda E., Paris M. Local environment of iodine dissolved as iodate in high-pressure aluminoborosilicate glasses: A I K-edge x-ray absorption spectroscopic study // J. Chem. Phys. 2022. Vol. 156. P. 154508. DOI: 10.1063/5.008903
16. Reiser J. T., Lawter A. R., Avalos N. A., Bonnett J., Riley B. J., Chong S. et al. Review and experimental comparison of the durability of iodine waste forms in semi-dynamic leach testing // Chem. Eng. J. Adv. 2022. Vol. 11. P. 100300. DOI: 10.1016/j.cej.2022.100300
17. Кабакчи С. А., Булгакова Г. П. Радиационная химия в ядерном топливном цикле / Научно-исследовательский физико-химический институт им. Л. Я. Карпова, Российский химико-технологический университет им. Д. И. Менделеева. — URL: <http://www.chemnet.ru/rus/teaching/kabakchi/> (дата обращения: 21.03.2022)
18. Seitz M. G., Couture R. A. Trace-element transport by fluid flow in lithic material. Fuel cycle programs progress report, January-March 1978. — URL: <https://digital.library.unt.edu/ark:/67531/metadc303814/> (дата обращения: 21.03.2022)
19. Rozov K. B., Rumynin V. G., Nikulenkov A. M., Leskova P. G. Sorption of ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, Se, ⁹⁹Tc, ¹⁵²⁽¹⁵⁴⁾Eu, ²³⁹⁽²⁴⁰⁾Pu on fractured rocks of the Yeniseysky site (Nizhne-Kansky massif, Krasnoyarsk region, Russia) // Journal of environmental radioactivity. 2018. Vol. 192. Pp. 513–523. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2018.08.0
20. Chemical Equilibrium Diagrams — URL: <https://sites.google.com/site/chemdiagr/> (дата обращения: 21.03.2022)
21. Muller I. S., McKeown D. A., Pegg I. L. Structural behavior of Tc and I ions in nuclear waste glass // Procedia Materials Science. 2014. Vol. 7. Pp. 53–59. DOI: 10.1016/j.mspro.2014.10.008.
22. Montel J. M. Minerals and design of new waste forms for conditioning nuclear waste // Comptes Rendus Geoscience. 2011. Vol. 343. No. 2–3. Pp. 230–236. DOI: 10.1016/j.crte.2010.11.006.
23. Srinivasan B., Alexander Jr. E. C., Manuel O. K. Iodine-129 in terrestrial ores // Science. 1971. Vol. 173. No. 3994. Pp. 327–328. DOI: 10.1126/science.173.3994.
24. Cao C., Chong S., Thirion L., Mauro J. C., McCloy J. S., Goel A. Wet chemical synthesis of apatite-based waste forms-A novel room temperature method for the immobilization of radioactive iodine // J. Mat. Chem. A. 2017. Vol. 5. Pp. 14331–14342. DOI: 10.1039/c7ta00230k.
25. Parkhurst D. L., Appelo C. User's guide to PHREEQC (Version 2) (Equations on which the

- program is based). Water-Resources Investigations Report 99-4259. Denver, Colorado, 1999.
26. *Brigatti M. F. et al.* Crystal chemistry of apatites from the Tapira carbonatite complex, Brazil // *European Journal of Mineralogy*. 2004. Vol. 16. No. 4. Pp. 677–685. DOI: 10.1127/0935-1221/2004/0016-067.
27. *Coulon A. et al.* Durability testing of an iodate-substituted hydroxyapatite designed for the conditioning of 129I // *Journal of Nuclear Materials*. 2017. Vol. 484. Pp. 324–331. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2016.10.047.
28. *Boldyrev K. A., Kryuchkov D. V., Martynov K. V. et al.* Numerical modeling of leaching of aluminophosphate glass in the batch mode in the presence of bentonite // *Radiochemistry*. 2019. Vol. 61. No. 5. Pp. 612–618. DOI: 10.1134/S1066362219050151
29. *Carlson L. et al.* Experimental studies of the interactions between anaerobically corroding iron and bentonite // *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*. 2007. Vol. 32. No. 1–7. Pp. 334–345. DOI: 10.1016/j.pce.2005.12.0
30. *Smart N. R. et al.* The anaerobic corrosion of carbon steel in saturated compacted bentonite in the Swiss repository concept // *Corrosion Engineering, Science and Technology*. 2017. Vol. 52. No. sup1. Pp. 113–126. DOI: 10.1080/1478422X.2013.1316088
31. *Madsen F. T.* Clay mineralogical investigations related to nuclear waste disposal // *Clay Minerals*. 1998. Vol. 33. No. 1. Pp. 109–129. DOI: 10.1180/000985598545318
32. *Couture R. A., Seitz G. M.* Sorption of anions of iodine by iron oxides and kaolinite // *Nuclear and chemical waste management*. 1983. Vol. 4. Pp. 301–306.
33. *Yu Z., Warner J. A., Dahlgren R. A., Casey W. H.* Reactivity of iodide in volcanic soils and noncrystalline soil constituents // *Geochimica et Cosmochimica Acta*. 1996. Vol. 60. No. 24. Pp. 4945–4956. DOI: 10.1016/S0016-7037(96)00305-5
34. *Nagata T., Fukushi K., Takahashi Y.* Prediction of iodide adsorption on oxides by surface complexation modeling with spectroscopic confirmation // *J. Colloid Interface Sci*. 2009. Vol. 332. No. 2. Pp. 309–316. DOI: 10.1016/j.jcis.2008.12.
35. *Neal C., Truesdale V. W.* The sorption of iodate and iodide by riverine sediments: Its implications to dilution gauging and hydro-chemistry of iodine // *J. Hydrol*. 1976. Vol. 31. Pp. 281–291.
36. *Wang G. et al.* Time-dependent iodate and iodide adsorption to Fe oxides // *ACS Earth and Space Chemistry*. 2019. Vol. 3. No. 11. Pp. 2415–2420. DOI: 10.1021/acsearthspacem.9b00145
37. *Kaplan D. I. et al.* Iodide sorption to subsurface sediments and illitic minerals // *Environmental Science and Technology*. 2000. Vol. 34. No. 3. Pp. 399–405.
38. *Molera M., Eriksen T., Jansson M.* Anion diffusion pathways in bentonite clay compacted to different dry densities // *Applied Clay Science*. 2003. Vol. 23. No. 1–4. Pp. 69–76. DOI: 10.1016/S0169-1317(03)00088-7.
39. *Pusch R., Muurinen A., Lehikoinen J., Bors J., Eriksen T.* Microstructural and Chemical Parameters of Bentonite as Determinants of Waste Isolation Efficiency. European Commission, Nuclear Science and Technology, Final Report, Contract NoFI4W-CT95-0012, EUR 18950 EN. 1999.
40. *Bors J., Dultz S., Riebe B.* Organophilic bentonites as adsorbents for radionuclides I. Adsorption of ionic fission products // *Appl. Clay Sci*. 2000. Vol. 16. Iss. 1–2. Pp. 1–13. DOI: 10.1016/S0169-1317(99)00041-1.
41. *Lee C. P. et al.* An improved speciation method combining IC with ICPOES and its application to iodide and iodate diffusion behavior in compacted bentonite clay // *Materials*. 2021. Vol. 14. No. 22. P. 7056. DOI: 10.3390/ma14227056
42. *Claret F. et al.* Natural iodine in a clay formation: Implications for iodine fate in geological disposals // *Geochimica et Cosmochimica Acta*. 2010. Vol. 74. No. 1. Pp. 16–29. DOI: 10.1016/j.gca.2009.09.030.
43. *Tournassat C., Gaucher E. C., Fattahi M., Grambow B.* On the mobility and potential retention of iodine in the Callovian–Oxfordian formation // *Phys. Chem. Earth*. 2007. Vol. 32. Iss. 8–14. Pp. 539–551. DOI: 10.1016/J.PCE.2005.12.0
44. *Haq Z., Bancroft G. M., Fyfe W. S., Bird G., Lopata V. J.* Sorption of Iodide on Copper // *Env. Sci and Tech*. 1980. Vol. 14. Pp. 1106–1110.
45. Long-term safety for KBS-3 repositories at Forsmark and Laxemar — a first evaluation. Main report of the SR-Can project, SKB Technical Report TR-06-09. Sweden, Stockholm, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company, 2006. 613 p.
46. *Тюпина Е. А., Прядко А. В.* Сорбент на основе бентонита, модифицированного хлоридом серебра методом осаждения, для фиксации анионных форм радиоактивного иода // *Сорбционные и хроматографические процессы*. 2023. Т. 23. № 1. С. 74–85. DOI: 10.17308/sorpchrom.2023.23/109
47. *Mattigod S. V., Serne R. J., Fryxell G. E.* Selection and Testing of “Getters” for Adsorption of Iodine-129 and Technetium-99: A Review. Pacific Northwest National Laboratory Report PNNL-14208, 2003. 41 p.
48. *Kaplan D., Mattigod S. V., Parker K. E., Iversen G.* 2000b. Experimental Work in Support of the ¹²⁹I-Disposal Special Analysis. WSR-TR-2000-00283, Rev 0. Westinghouse Savannah River Company, Savannah River Site, Aiken, South Carolina.
49. *Mattigod S. V., Fryxell G. E., Serne R. J., Parker K. E.* Evaluation of Novel Getters for adsorption of radioiodine from Groundwater and waste glass

- leachates // *Radiochimica Acta*. 2003. Vol. 91. No. 9. Pp. 539–546. DOI: 10.1524/ract.91.9.539.20
50. *Mattigod S. V., Fryxell G., Parker K., Kaplan D.* Novel Functionalized Ceramic Getter Materials for Adsorption of Radioiodine. *MRS Online Proceedings Library (OPL)*, 757. 2002 — URL: <https://link.springer.com/article/10.1557/P0C-757-II8.7> (дата обращения: 24.03.2023)
51. *Богатов С. А., Дробышевский Н. И., Крупская В. В., Закусин С. В., Лехов В. А.* Предварительные оценки параметров инженерных барьеров в концепции ПГЗРО с горизонтальным размещением упаковок РАО в контейнерах с медным покрытием // *Радиоактивные отходы*. 2023. № 3 (24). С. 77–91. DOI: 10.25283/2587-9707-2023-3-77-91
52. *Stroes-Gascoyne S., Hamon C. J., Dixon D. A., Kohle C. L., Maak P.* The Effects of Dry Density and Pore-water Salinity on the Physical and Microbiological Characteristics of Compacted 100% Bentonite // *MRS Online Proc. Libr.* 2007. Vol. 985. No. 1. P. 1302. DOI: 10.1557/P0C-985-0985-NN13-02.
53. *Pedersen K., Motamedi M., Karland O., Sandén T.* Cultivability of microorganisms introduced into a compacted bentonite clay buffer under high-level radioactive waste repository conditions // *Eng. Geol.* 2000. Vol. 58. No. 2. Pp. 149–161. DOI: 10.1016/S0013-7952(00)00056-9.

Информация об авторах

Блохин Павел Анатольевич, кандидат технических наук, заведующий отделом, Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН (115191, Москва, Большая Тульская ул., д. 52), e-mail: blokhin@ibrae.ac.ru

Богатов Сергей Александрович, кандидат физико-математических наук, ведущий научный сотрудник, Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН (115191, Москва, Большая Тульская ул., д. 52), e-mail: sbg@ibrae.ac.ru

Болдырев Кирилл Александрович, кандидат технических наук, старший научный сотрудник, Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН (115191, Москва, Большая Тульская ул., д. 52), e-mail: kaboldyrev@ibrae.ac.ru

Соболев Денис Андреевич, техник, Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН (115191, Москва, Большая Тульская ул., д. 52), e-mail: sobolev@ibrae.ac.ru

Библиографическое описание статьи

Блохин П. А., Богатов С. А., Болдырев К. А., Соболев Д. А. Влияние сорбции на выход иода-129 из ближней зоны ПГЗРО // *Радиоактивные отходы*. 2024. № 1 (26). С. 57–68. DOI: 10.25283/2587-9707-2024-1-57-68.

SORPTION INFLUENCE ON IODINE-129 RELEASE FROM THE DGR'S NEAR FIELD

Blokhin P. A., Bogatov S. A., Boldyrev K. A., Sobolev D. A.

Nuclear Safety Institute of Russian Academy of Sciences, Moscow, Russia

Article received on December 8, 2023

In terms of potential long-term radiation hazard, ¹²⁹I is seen as a most problematic radionuclide, which is explained by its high mobility and long half-life. The paper explores its forms that may occur in VHLW from SNF reprocessing. It also overviews the studies focused on ¹²⁹I sorption by engineered barrier materials considered typical for DGR

sited in crystalline rocks, namely, bentonite and steel containers for vitrified high-level waste. The paper shows that when considered, the realistic coefficients for the interphase ^{129}I distribution on bentonite and carbon steel corrosion products have little effect on its release beyond the DGR's near field. However, ^{129}I release into the DGR's near field is expected to be retarded in a quite considerable way if the empty space inside the insulating containers is filled with selective sorbents.

Keywords: radionuclide transport, radioiodine, modelling, radioactive waste.

References

1. *Safety Case for the Disposal of Spent Nuclear Fuel at Olkiluoto – Assessment of Radionuclide Release Scenarios for the Repository System*. Working Report 2012–09, December 2012. Finland, Eurajoki, Posiva Oy. 2012.
2. *Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark*. Main report of the SR-Site project. SKB TR-11-01. Svensk Kärnbränslehantering AB, 2011.
3. Dorofeev A. N., Bolshov L. A., Linge I. I., Utkin S. S., Saveleva E. A. Strategicheskii master-plan issledovaniy v obosnovanie bezopasnosti sooruzheniya, ehkspluatatsii i zakrytiya punkta glubinnogo zakhoroneniya radioaktivnykh otkhodov [Strategic Master Plan for R&D Demonstrating the Safety of Construction, Operation and Closure of a Deep Geological Disposal Facility for Radioactive Waste]. *Radioaktivnye otkhody – Radioactive Waste*, 2017, no. 1, pp. 32–41.
4. Sakurai T., Takahashi A., Ishikawa N., Komaki Y., Ohnuki M., Adachi, T. The iodine species and their behavior in the dissolution of spent-fuel specimens. *Nucl. Technol.*, 1992, vol. 99, pp. 70–79. DOI: 10.13182/NT92A34704.
5. National programmes in chemical partitioning: a status report (2010). NEA No. 5425, OECD, 2010. – 124 p.
6. Meleshyn A., Noseck U. Radionuclide Inventory of Vitrified Waste after Spent Nuclear Fuel Reprocessing at La Hague. Basic Issues and Current State in Germany. Report GRS-294, September 2012. – 158 p.
7. Bogatov S. A., Blokhin P. A., Kozlov P. V., Remizov M. B. Otsenochnyy raschot aktivnosti nekotorykh dolgozhivushchikh radionuklidov v sostave RAO klassa 1 – osteklovannykh VAO, obrazuyushchikhnya pri pererabotke OYAT reaktorov VVER [Evaluation of Activities of Some Long-Lived Radio Nuclides in Radioactive Waste of Class 1, I.E Vitrified HLW Generated in the Course of Reprocessing of SNF from VVERs]. *Voprosy radiatsionnoi bezopasnosti – Radiation Safety Issues*, 2019, no. 2, pp. 39–46.
8. Bernard-Mozziconacci O., Devisme F., Marignier J. L., Belloni J. Colloidal silver iodide characterization within the framework of nuclear spent fuel dissolution. *Proceedings of the ATALANTE 2004 conference*, Nimes, 2004.
9. Buck E. C., Mausolf E. J., McNamara B. K., Soderquist C. Z., Schwantes J. M. Sequestration of radioactive iodine in silver-palladium phases in commercial spent nuclear fuel. *J. Nucl. Mater.*, 2016, vol. 482, pp. 229–235. DOI: 10.1016/j.jnucma.2016.10.02
10. Glagolenko Yu. V., Dzekun E. G., Rovnyy S. I., Sazhnov V. K., Ufimtsev V. P. et al. Pererabotka otrabotavshogo yadernogo topliva na komplekse RT-1: Istoriya, problemy, perspektivy [Spent nuclear fuel reprocessing at the RT-1 plant: background, problems, prospects]. *Voprosy radiatsionnoy bezopasnosti – Radiation Safety Issues*, 1997, no. 2, pp. 3–12.
11. Dzekun E. G., Borisov G. B., Polyakov A. S. et al. Opyt ehkspluatatsii keramicheskogo plavitelya EP-500/1-r po osteklovyvaniyu zhidkikh vysokoaktivnykh otkhodov [Ceramic melter EP-500/1-r designed for liquid high-level waste vitrification: operational experience]. *Atomnaya energiya – Atomic Energy*, 1994, vol. 76, iss. 3, pp. 183–188.
12. McKeown D. A., Muller I. S., Pegg I. L. Iodine valence and local environments in borosilicate waste glasses using X-ray absorption spectroscopy. *J. Nucl. Mater.*, 2015, vol. 456, pp. 182–191. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2014.09.033
13. Jolivet V., Morizet Y., Paris M., Suzuki-Muresan T. High pressure experimental study on iodine solution mechanisms in nuclear waste glasses. *J. Nucl. Mater.*, 2020, vol. 533, p. 152112. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2020.1521
14. Vénague B., Campayo L., Toplis M. J., Charpentier T., Moskura M., Dussossoy J.-L. Role of alkalis on the incorporation of iodine in simple borosilicate glasses. *J. Non. Cryst. Solids.*, 2022, vol. 576, p. 121278. DOI: 10.1016/j.jnonysol.2021.121278.
15. Morizet Y., Trcera N., Suzuki-Muresan T., Soudani S., Fonda E., Paris M. Local environment of iodine dissolved as iodate in high-pressure aluminoborosilicate glasses: A I K-edge x-ray absorption spectroscopic study. *J. Chem. Phys.*, 2022, vol. 156, p. 154508. DOI: 10.1063/5.008903
16. Reiser J. T., Lawter A. R., Avalos N. A., Bonnett J., Riley B. J., Chong S. et al. Review and experimental comparison of the durability of iodine waste forms in semi-dynamic leach testing. *Chem. Eng. J. Adv.*, 2022, vol. 11, p. 100300. DOI: 10.1016/j.cej.2022.100300
17. Kabakchi S. A., Bulgakova G. P. *Radiatsionnaya khimiya v yadernom toplivnom tsikle* [Radiation chemistry in nuclear fuel cycle]. Nauchno-issledovatel'skiy fizi o-khimicheskii institut im I. Ya. Karpova,

- Rossiyskiy khimiko-tehnologicheskii universitet im. D. I. Mendeleeva [L. Ya. Karpov's Scientific Research Institute of Physics and Chemistry, Mendeleev Chemical-Technological University]. — URL: <http://www.chemnet.ru/rus/teaching/kabakchi/> (accessed data: 21.03.2022).
18. Seitz M. G., Couture R. A. *Trace-element transport by fluid flow in lithic material*. Fuel cycle programs progress report, January-March 1978. — URL: <https://digital.library.unt.edu/ark:/67531/metadc303814/> (accessed data: 21.03.2022)
19. Rozov K. B., Rumynin V. G., Nikulenkov A. M., Leskova P. G. Sorption of ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{99}Tc , $^{152(154)}\text{Eu}$, $^{239(240)}\text{Pu}$ on fractured rocks of the Yeniseysky site (Nizhne-Kansky massif, Krasnoyarsk region, Russia). *Journal of environmental radioactivity*, 2018, vol. 192, pp. 513–523. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2018.08.001.
20. *Chemical Equilibrium Diagrams* — URL: <https://sites.google.com/site/chemdiagr/> (accessed data: 21.03.2022)
21. Muller I. S., McKeown D. A., Pegg I. L. Structural behavior of Tc and I ions in nuclear waste glass. *Procedia Materials Science*, 2014, vol. 7, pp. 53–59. DOI: 10.1016/j.mspro.2014.10.008.
22. Montel J. M. Minerals and design of new waste forms for conditioning nuclear waste. *Comptes Rendus Geoscience*, 2011, vol. 343, no. 2–3, pp. 230–236. DOI: 10.1016/j.crte.2010.11.006.
23. Srinivasan B., Alexander Jr. E. C., Manuel O. K. Iodine-129 in terrestrial ores. *Science*, 1971, vol. 173, no. 3994, pp. 327–328. DOI: 10.1126/science.173.3994.
24. Cao C., Chong S., Thirion L., Mauro J. C., McCloy J. S., Goel A. Wet chemical synthesis of apatite-based waste forms—A novel room temperature method for the immobilization of radioactive iodine. *J. Mat. Chem. A*, 2017, vol. 5, pp. 14331–14342. DOI: 10.1039/c7ta0230k.
25. Parkhurst D. L., Appelo C. *User's guide to PHREEQC (Version 2) (Equations on which the program is based)*. Water-Resources Investigations Report 99–4259. Denver, Colorado, 1999.
26. Brigatti M. F. et al. Crystal chemistry of apatites from the Tapira carbonatite complex, Brazil. *European Journal of Mineralogy*, 2004, vol. 16, no. 4, pp. 677–685. DOI: 10.1127/0935-1221/2004/0016-067.
27. Coulon A. et al. Durability testing of an iodate-substituted hydroxyapatite designed for the conditioning of ^{129}I . *Journal of Nuclear Materials*, 2017, vol. 484, pp. 324–331. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2016.10.
28. Boldyrev K. A., Kryuchkov D. V., Martynov K. V. et al. Numerical modeling of leaching of aluminophosphate glass in the batch mode in the presence of bentonite. *Radiochemistry*, 2019, vol. 61, no. 5, pp. 612–618. DOI: 10.1134/S1066362219050151
29. Carlson L. et al. Experimental studies of the interactions between anaerobically corroding iron and bentonite. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 2007, vol. 32, no. 1–7, pp. 334–345. DOI: 10.1016/j.jpce.2005.12.0
30. Smart N. R. et al. The anaerobic corrosion of carbon steel in saturated compacted bentonite in the Swiss repository concept. *Corrosion Engineering, Science and Technology*, 2017, vol. 52, no. sup1, pp. 113–126. DOI: 10.1080/1478422X.2013.16088
31. Madsen F. T. Clay mineralogical investigations related to nuclear waste disposal. *Clay Minerals*, 1998, vol. 33, no. 1, pp. 109–129. DOI: 10.1180/000985598545318
32. Couture R. A., Seitz G. M. Sorption of anions of iodine by iron oxides and kaolinite. *Nuclear and chemical waste management*, 1983, vol. 4, pp. 301–306.
33. Yu Z., Warner J. A., Dahlgren R. A., Casey W. H. Reactivity of iodide in volcanic soils and noncrystalline soil constituents. *Geochimica et Cosmochimica Acta*. 1996. Vol. 60. No. 24. Pp. 4945–4956. DOI: 10.1016/S0016-7037(96)00305-5
34. Nagata T., Fukushi K., Takahashi Y. Prediction of iodide adsorption on oxides by surface complexation modeling with spectroscopic confirmation. *J. Colloid Interface Sci.*, 2009, vol. 332, no. 2, pp. 309–16. DOI: 10.1016/j.jcis.2008.12.
35. Neal C., Truesdale V. W. The sorption of iodate and iodide by riverine sediments: Its implications to dilution gauging and hydro-chemistry of iodine. *J. Hydrol.*, 1976, vol. 31, pp. 281–291.
36. Wang G. et al. Time-dependent iodate and iodide adsorption to Fe oxides. *ACS Earth and Space Chemistry*, 2019, vol. 3, no. 11, pp. 2415–2420. DOI: 10.1021/acsearthspacem.9b00145
37. Kaplan D. I. et al. Iodide sorption to subsurface sediments and illitic minerals. *Environmental Science and Technology*, 2000, vol. 34, no. 3, pp. 399–405.
38. Molera M., Eriksen T., Jansson M. Anion diffusion pathways in bentonite clay compacted to different dry densities. *Applied Clay Science*, 2003, vol. 23, no. 1–4, pp. 69–76. DOI: 10.1016/S0169-1317(03)00088-7.
39. Pusch R., Muurinen A., Lehtikoinen J., Bors J., Eriksen T. *Microstructural and Chemical Parameters of Bentonite as Determinants of Waste Isolation Efficiency*. European Commission, Nuclear Science and Technology, Final Report, Contract NoFI4W-CT95-0012, EUR 18950 EN. 1999.
40. Bors J., Dultz S., Riebe B. Organophilic bentonites as adsorbents for radionuclides I. Adsorption of ionic fission products. *Appl. Clay Sci.*, 2000, vol. 16, iss. 1–2, pp. 1–13. DOI: 10.1016/S0169-1317(99)00041-1
41. Lee C. P. et al. An improved speciation method combining IC with ICPOES and its application to iodide and iodate diffusion behavior in compacted

- bentonite clay. *Materials*, 2021, vol. 14, no. 22, p. 7056. DOI: 10.3390/ma14227056
42. Claret F. et al. Natural iodine in a clay formation: Implications for iodine fate in geological disposals. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2010, vol. 74, no. 1, pp. 16–29. DOI: 10.1016/j.gca.2009.09.030.
43. Tournassat C., Gaucher E. C., Fattahi M., Grambow B. On the mobility and potential retention of iodine in the Callovian–Oxfordian formation. *Phys. Chem. Earth*, 2007, vol. 32, iss. 8–14, pp. 539–551. DOI: 10.1016/J.PCE.2005.12.0
44. Haq Z., Bancroft G. M., Fyfe W. S., Bird G., Lopata V. J. Sorption of Iodide on Copper. *Env. Sci and Tech.*, 1980, vol. 14, pp. 1106–1110.
45. *Long-term safety for KBS-3 repositories at Forsmark and Laxemar — a first evaluation*. Main report of the SR-Can project, SKB Technical Report TR-06-09. Sweden, Stockholm, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company, 2006. 613 p.
46. Tyupina E. A., Pryadko A. V. Sorbent na osnove bentonita, modifitsir vannogo khloridom serebra metodom osazhdeniya, dlya fiksatsii anionnykh form radioaktivnogo ioda [Sorbent based on bentonite modified with silver chloride by precipitation method able to capture the anionic forms of radioactive iodine]. *Sorbtsionnyye i khromatograficheski e protsessy — Sorption and chromatographic processes*, 2023, vol. 23, no. 1, pp. 74–85. DOI: 10.17308/sorpchrom.2023.23/1099
47. Mattigod S. V., Serne R. J., Fryxell G. E. *Selection and Testing of “Getters” for Adsorption of Iodine-129 and Technetium-99: A Review*. Pacific Northwest National Laboratory Report PNNL-14208, 2003. 41 p.
48. Kaplan D., Mattigod S. V., Parker K. E., Iversen G. 2000b. *Experimental Work in Support of the 129I-Disposal Special Analysis*. WSRC-TR-2000-00283, Rev 0. Westinghouse Savannah River Company, Savannah River Site, Aiken, South Carolina.
49. Mattigod S. V., Fryxell G. E., Serne R. J., Parker K. E. Evaluation of Novel Getters for adsorption of radioiodine from Groundwater and waste glass leachates. *Radiochimica Acta*, 2003, vol. 91, no. 9, pp. 539–546. DOI: 10.1524/ract.91.9.539.20
50. Mattigod S. V., Fryxell G., Parker K., Kaplan D. Novel Functionalized Ceramic Getter Materials for Adsorption of Radioiodine. *MRS Online Proceedings Library (OPL)*, 757. 2002 — URL: <https://link.springer.com/article/10.1557/P.OC-757-II8.7> (accessed data: 24.03.2023)
51. Bogatov S. A., Drobyishevskiy N. I., Krupskaya V. V., Zakusin S. V., Lekhov V. A. Predvaritel'nye ocenki parametrov inzhenernykh bar'erov v koncepcii PG-ZRO s gorizontalmym razmeshcheniem upakovok RAO v kontejnerah s mednym pokrytiem [Preliminary Assessment of Engineered Barrier Parameters under DGR Concept with Horizontal Orientation of RW Packages in Copper Coated Containers]. *Radioaktivnye otkhody — Radioactive Waste*, 2023, no. 3 (24), pp. 77–91. DOI: 10.25283/258-9707-2023-3-77-91.
52. Stroes-Gascoyne S., Hamon C. J., Dixon D. A., Kohle C. L., Maak P. The Effects of Dry Density and Porewater Salinity on the Physical and Microbiological Characteristics of Compacted 100% Bentonite. *MRS Online Proc. Libr.*, 2007, vol. 985, no. 1, p. 1302. DOI: 10.1557/P.OC-985-0985-NN13-02.
53. Pedersen K., Motamedi M., Karnland O., Sandén T. Cultivability of microorganisms introduced into a compacted bentonite clay buffer under high-level radioactive waste repository conditions. *Eng. Geol.*, 2000, vol. 58, no. 2, pp. 149–161. DOI: 10.1016/S0013-7952(00)00056-9.

Information about the authors

Blokhin Pavel Anatolievich, PhD, Head of the Department, Nuclear Safety Institute of the Russian Academy of Sciences (52, Bolshaya Tulsкая st., Moscow, 115191, Russia), e-mail: blokhin@ibrae.ac.ru

Bogatov Sergey Aleksandrovich, PhD, Leading Researcher, Nuclear Safety Institute of the Russian Academy of Sciences (52, Bolshaya Tulsкая st., Moscow, 115191, Russia), e-mail: sbg@ibrae.ac.ru

Boldyrev Boldyrev Kirill Aleksandrovich, PhD, Senior Researcher, Nuclear Safety Institute of the Russian Academy of Sciences (52, Bolshaya Tulsкая st., Moscow, 115191, Russia), e-mail: kaboldyrev@ibrae.ac.ru

Sobolev Denis Andreevich, technician, Nuclear Safety Institute of the Russian Academy of Sciences (52, Bolshaya Tulsкая st., Moscow, 115191, Russia), e-mail: sobolev@ibrae.ac.ru

Bibliographic description

Blokhin P. A., Bogatov S. A., Boldyrev K. A., Sobolev D. A. Sorption Influence on Iodine-129 Release from the DGR'S Near Field. *Radioactive Waste*, 2024, no. 1 (26), pp. 57–68. DOI: 10.25283/2587-9707-2024-1-57-68. (In Russian).